

PCT/JP 04/11591

PCT/JP 2004/011591

03.09.2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

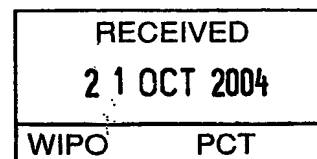
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 3 年 8 月 1 2 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 2 9 2 2 3 5
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 2 9 2 2 3 5]

出 願 人
Applicant(s): 日 本 碍 子 株 式 会 社



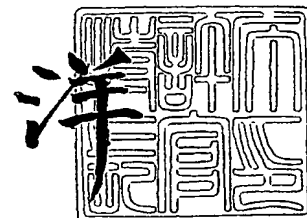
Best Available Copy

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 0 月 7 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願
【整理番号】 03P00222
【提出日】 平成15年 8月12日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 B01J 27/224
B01D 53/86
B01J 37/14

【発明者】
【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内
【氏名】 市川 周一

【発明者】
【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内
【氏名】 内田 靖司

【発明者】
【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内
【氏名】 金田 淳志

【特許出願人】
【識別番号】 000004064
【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】
【識別番号】 100108707
【弁理士】
【氏名又は名称】 中村 友之
【電話番号】 03-3504-3075

【代理人】
【識別番号】 100083806
【弁理士】
【氏名又は名称】 三好 秀和

【選任した代理人】
【識別番号】 100095500
【弁理士】
【氏名又は名称】 伊藤 正和

【選任した代理人】
【識別番号】 100101247
【弁理士】
【氏名又は名称】 高橋 俊一

【選任した代理人】
【識別番号】 100098327
【弁理士】
【氏名又は名称】 高松 俊雄

【選任した代理人】
【識別番号】 100108914
【弁理士】
【氏名又は名称】 鈴木 壯兵衛

【選任した代理人】
【識別番号】 100104031
【弁理士】
【氏名又は名称】 高久 浩一郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001982

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 特許請求の範囲 1

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0110307

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

骨材としての多数の炭化珪素粒子が多数の細孔を保持した状態で相互に結合した結合組織により構成された多孔体からなるハニカム構造体に、アルミナ及びセリアを成分として含有する触媒が担持されている炭化珪素質触媒体であって、

前記触媒が前記結合組織を構成する炭化珪素粒子の表面に、ハニカム構造体の2重量%以上10重量%以下の酸素と、珪素を含む酸化物とからなる皮膜を介して担持されていることを特徴とする炭化珪素質触媒体。

【請求項 2】

前記皮膜がアルミナ及び／またはジルコニアを含有していることを特徴とする請求項1記載の炭化珪素質触媒体。

【請求項 3】

前記皮膜が結晶相としてクリストバライト及び／またはジルコン及び／またはムライトを含有していることを特徴とする請求項1または2記載の炭化珪素質触媒体。

【請求項 4】

骨材としての炭化珪素粒子が金属珪素によって結合していることを特徴とする請求項1記載の炭化珪素質触媒体。

【請求項 5】

炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状として本焼成した後、酸素含有雰囲気下で熱処理し、その後、アルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることを特徴とする炭化珪素質触媒体の製造方法。

【請求項 6】

前記熱処理を酸素および水蒸気含有雰囲気下で行うことを特徴とする請求項5記載の炭化珪素質触媒体の製造方法。

【請求項 7】

前記熱処理を天然ガスを燃料としたバーナー加熱により行うことを特徴とする請求項5記載の炭化珪素質触媒体の製造方法。

【請求項 8】

前記熱処理を800～1400℃の温度で行うことを特徴とする請求項5～7のいずれか1項記載の炭化珪素質触媒体の製造方法。

【請求項 9】

炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状とし、酸素含有雰囲気下でバインダーを除去した後、熱処理を行い、その後、本焼成し、本焼成後にアルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることを特徴とする炭化珪素質触媒体の製造方法。

【請求項 10】

前記熱処理を400～1000℃の温度で行うことを特徴とする請求項9記載の炭化珪素質触媒体の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】炭化珪素質触媒体及びその製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、自動車排ガス浄化用の酸化触媒に代表されるアルミナ及びセリアを含有した触媒体、特にディーゼルエンジンから排出されるパティキュレートを含んだ排ガス浄化用に用いられる炭化珪素質触媒体及びその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

上述したフィルタに用いる触媒体の骨材としては、コーディエライトが用いられていたが、耐熱性や化学耐久性の観点から、近年では、炭化珪素（SiC）を始めとする非酸化物セラミックスが使用されている。

【0003】

炭化珪素は、ディーゼルエンジンから排出されるパティキュレートを含んだ排ガス浄化用のフィルタとして好適に使用されている。炭化珪素が捕集したパティキュレートを燃焼させてフィルタを再生する際の高温に耐えることができるためである。

【0004】

図1及び図2は、ディーゼルエンジンの排ガス中のパティキュレートを捕集するDPF（ディーゼルパティキュレートフィルタ）を構成する一単位としてのハニカム構造体1を示す。DPFは、このハニカム構造体1の複数を縦横方向への段積み状態で接合した後、外形を円形、楕円形その他の形状に切削加工することにより作製される。

【0005】

ハニカム構造体（ハニカムセグメント）1は、多孔質の隔壁2によって仕切られた多数の流通孔3を有している。流通孔3はハニカム構造体1を軸方向に貫通しており、隣接している流通孔3における一端部が充填材4によって交互に目封じされている。すなわち、一の流通孔3においては、左端部が開口している一方、右端部が充填材4によって目封じされており、これと隣接する他の流通孔3においては、左端部が充填材4によって目封じされるが、右端部が開口されている。

【0006】

このような構造とすることにより、図2の矢印に示すように、排ガスは左端部が開口している流通孔に流入した後、多孔質の隔壁を通過して他の流通孔から流出する。そして、隔壁2を通過する際に排ガス中のパティキュレートが隔壁2に捕捉されるため、排ガスの浄化を行うことができる。

【0007】

なお、図1において、ハニカム構造体1は、正方形断面となっているが、三角形断面、六角形断面等の適宜の断面形状とすることができ、流通孔3の断面形状においても、三角形、六角形、円形、楕円形、その他の形状とすることができるものである。

【0008】

以上のフィルタとしてのハニカム構造体において、捕集されたパティキュレートを燃焼させてフィルタを元の状態に戻す再生では、酸化触媒をフィルタに予め担持させておくことにより、燃焼を促進させる触媒担持手法が行われている。この酸化触媒としては、触媒である白金等の貴金属粒子及びこの貴金属粒子を分散して配置するための基材としてのアルミナ、ジルコニア、希土類、アルカリ土類さらには助触媒としてのセリア等の酸化物微粉末が用いられている。

【0009】

このような触媒を骨材である炭化珪素に担持させた従来の触媒体の構造としては、ハニカム構造に形成された多孔質炭化珪素の焼結体の孔部内面に触媒担持用のシリカ膜を形成すると共に、このシリカ膜を含む多孔質炭化珪素焼結体の酸素濃度を0.005wt%から2wt%としたものが知られている（特許文献1参照）。

【0010】

また、ハニカム構造に形成された多孔質炭化珪素の焼結体の孔部内面に強度増加用のシリカ膜を形成すると共に、このシリカ膜を含む多孔質炭化珪素焼結体の酸素濃度を 1 wt % から 10 wt % とした構造も知られている（特許文献 2 参照）。

【0011】

さらには、骨材となる炭化珪素粒子と金属珪素とを含み、これらの表面若しくは周辺に 0.03 ~ 15 重量%の酸素を含有する相を形成した構造が知られている（特許文献 3 参照）。

【特許文献 1】特許第 2731562 号公報

【特許文献 2】特開 2000-218165 号公報

【特許文献 3】特開 2002-154882 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

しかしながら、従来の触媒体では、過剰量にスートがフィルタに堆積して、再生の際に過度の高温に曝されると、変色や破損が発生するケースがあった。

【0013】

本発明者は、これらが炭化珪素や金属珪素のような非酸化物セラミックスの場合のみに特異的に起こる現象であることを見出した。さらに、発明者が検討した結果、炭化珪素や金属珪素にアルミナ及びセリアを成分として含有する触媒が担持されている場合であって、且つ炭化珪素のフィルタに過剰量堆積したスートが燃焼することにより、温度上昇及びスート燃焼による還元により酸素濃度が 1 % 以下程度まで低下した場合に、炭化珪素や金属珪素の表面に保護性のシリカ膜が形成されずに炭化珪素が急激に酸化されることを見出した。

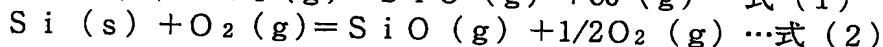
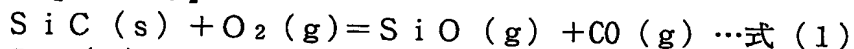
【0014】

そして、このような急激な酸化反応が生じると、酸化による反応熱でフィルタ内部の温度がさらに上昇して、1700℃以上の高温に上昇する場合があります、これによりフィルタの破損の原因となるものである。

【0015】

この酸化反応は、SiC が酸化して表面に SiO₂ の固体膜が生成するのではなく、下記式 (1)、式 (2) で示すように SiO がガスとして揮散する反応となっている。

【0016】



さらに、発生した SiO ガスが雰囲気中の酸素と化合して SiO₂ のファイバーを生成して表面に析出する。このため、このような酸化反応が生じた部分では、生成した SiO₂ ファイバーにより白色に変色する。

【0017】

このとき、アルミナ及びセリアは、式 (1) における SiC や、式 (2) における Si の酸化が生じる温度を低下させるように作用する。この理由は明確に判明していないが、上式における SiO (g) と、触媒成分のアルミナやセリアとの間での化学的な相互作用が影響しているものと考えられる。

【0018】

本発明は、このような従来の問題点を考慮してなされたものであり、炭化珪素粒子を骨材とするハニカム構造体であって、アルミナ及びセリアを触媒として担持している触媒体が高温に曝されても白色化したり、破損を生じることのない炭化珪素質触媒体及びその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0019】

請求項 1 の発明の炭化珪素質触媒体は、骨材としての多数の炭化珪素粒子が多数の細孔を保持した状態で相互に結合した結合組織により構成された多孔体からなるハニカム構造

体に、アルミナ及びセリアを成分として含有する触媒が担持されている炭化珪素質触媒体であって、前記触媒が前記結合組織を構成する炭化珪素粒子の表面に、ハニカム構造体の2重量%以上10重量%以下の酸素と、珪素を含む酸化物とからなる皮膜を介して担持されていることを特徴とする。

【0020】

請求項2の発明は、請求項1記載の炭化珪素質触媒体であって、前記皮膜がアルミナ及び／またはジルコニアを含有していることを特徴とする。

【0021】

請求項3の発明は、請求項1または2記載の炭化珪素質触媒体であって、前記皮膜が結晶相としてクリストバライト及び／またはジルコン及び／またはムライトを含有していることを特徴とする。

【0022】

請求項4の発明は、請求項1記載の炭化珪素質触媒体であって、骨材としての炭化珪素粒子が金属珪素によって結合していることを特徴とする。

【0023】

請求項5の発明の炭化珪素質触媒体の製造方法は、炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状として本焼成した後、酸素含有雰囲気下で熱処理し、その後、アルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることを特徴とする。

【0024】

請求項6の発明は、請求項5記載の炭化珪素質触媒体の製造方法であって、前記熱処理を酸素および水蒸気含有雰囲気下で行うことを特徴とする。

【0025】

請求項7の発明は、請求項5記載の炭化珪素質触媒体の製造方法であって、前記熱処理を天然ガスを燃料としたバーナー加熱により行うことを特徴とする。

【0026】

請求項8の発明は、請求項5～7のいずれか1項記載の炭化珪素質触媒体の製造方法であって、前記熱処理を800～1400℃の温度で行うことを特徴とする。

【0027】

請求項9の発明の炭化珪素質触媒体の製造方法は、炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状とし、酸素含有雰囲気下でバインダーを除去した後、熱処理を行い、その後、本焼成し、本焼成後にアルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることを特徴とする。

【0028】

請求項10の発明は、請求項9記載の炭化珪素質触媒体の製造方法であって、前記熱処理を400～1000℃の温度で行うことを特徴とする。

【発明の効果】**【0029】**

請求項1の発明の炭化珪素質触媒体では、アルミナ及びセリアを成分として含有する触媒がハニカム構造体の2重量%以上10重量%以下の酸素と、珪素を含む酸化物とからなる皮膜を介して炭化珪素粒子の表面に担持されていることにより、激しい酸化反応が抑制されるため、ハニカム構造体の再生などにおいて、炭化珪素粒子が白色化したり、上記酸化反応により過度に温度が上昇することがなく、ハニカム構造体の破損を防止することができる。

【0030】

請求項2及び3の発明では、皮膜の耐熱性を向上させることができ、ハニカム構造体全体の耐熱性が向上する。

【0031】

請求項4の発明では、炭化珪素粒子を結合する金属珪素が炭化珪素と同様に酸化反応するため、同様の効果でハニカム構造体の破損を防止することができる。

【0032】

請求項 5 及び 9 の発明の製造方法では、アルミナ及びセリアを成分として含有する触媒をハニカム構造体の 2 重量%以上 10 重量%以下の酸素と、珪素を含む酸化物とからなる皮膜に担持させることにより、触媒体全体の耐熱性を向上させることができる。

【0033】

請求項 6 及び 7 の発明の製造方法では、酸化皮膜の形成を促進させることができる。

【0034】

請求項 8 及び 10 の発明の製造方法では、保護膜として機能するのに十分な酸化皮膜の生成と、圧力損失の上昇の抑制とを共に図ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0035】

本発明の炭化珪素質触媒体は、ハニカム構造体と、ハニカム構造体に担持された触媒とを備えるものである。ハニカム構造体は、骨材としての多数の炭化珪素粒子が多数の細孔を保持した状態で相互に結合した結合組織により構成された多孔体から形成される。

【0036】

触媒は、アルミナ及びセリアを成分として含有するものである。この触媒は、ハニカム構造体の 2 重量%以上 10 重量%以下の酸素と珪素を含む酸化物とからなる皮膜を介して炭化珪素粒子の表面に担持される。また、触媒としては、上述したアルミナ及びセリア以外に、貴金属成分やアルカリ土類金属等のその他の成分を含むことができる。

【0037】

上記多孔体は、炭化珪素粒子が直接に相互に結合した組織を形成している場合であっても良く、炭化珪素粒子の間に炭化珪素以外の結合材が介在することにより炭化珪素粒子を結合している構造であっても良い。この場合の結合材としては、ガラス、酸化珪素、金属珪素、窒化珪素、粘土等を使用することができる。これらの中で、結合材として金属珪素を用いた場合、金属珪素が炭化珪素と同様に酸化が生じる物質であるので、本発明の効果が有効に発現する。

【0038】

皮膜における酸素量は、ハニカム構造体の 2 重量%以上 10 重量%以下である。さらに望ましい範囲は 3.5 重量%以上 8 重量%以下である。酸素量が 2 重量%未満の場合には、炭化珪素と触媒成分の反応を抑制するのに皮膜の量が十分でなく、酸化が生じやすくなる。また酸素量が 10 重量%を超える場合には、酸化物である皮膜の量が多くなり過ぎて、DPF 用途における重要特性である圧力損失に影響する気孔率が低下するためである。

【0039】

本発明では、上記皮膜がアルミナ及び/またはジルコニアを含有することができる。また、皮膜が結晶相としてクリストバライト及び/またはジルコン及び/またはムライトを含有することもできる。このような物質を含有することにより、皮膜の耐熱性を向上させることが可能となる。すなわち、シリカの融点が 1730℃程度であるのに対して、シリカ、アルミナの反応生成物であるムライトは 1850℃、シリカ、ジルコニアの反応生成物であるジルコンは 2550℃程度の融点を有するため、耐熱性をより高めることが可能となるものである。

【0040】

これらの皮膜の形成は、炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状として本焼成した後、酸素含有雰囲気下で熱処理することにより行うことができる。熱処理は、本焼成した後に降温の過程で同一の炉において連続して行われる場合もあるし、一度本焼成を終えて炉から取り出された焼成体に対して別の炉を用いて行われる場合もある。そして、この熱処理の後、アルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることにより、上述した本発明の炭化珪素質触媒体を作製することができる。

【0041】

本焼成の後の熱処理は、800～1400℃の温度で行うことが好ましい。また、熱処理を行う際に、酸素、H₂O を一定量含有する蒸気を吹き込むことによって酸化皮膜の形成を促進させることは望ましい手法である。

【0042】

またメタンを主成分とする炭化水素からなる天然ガスを用いたバーナー燃焼加熱は、炭化水素の燃焼により酸素、 H_2O を一定量含有する雰囲気中に制御することが可能であり、電気炉に比較してエネルギーコストを低く抑えることができるため望ましい手法である。

【0043】

また本焼成において、最高温度から降温する過程で、雰囲気を不活性ガスから酸化雰囲気に切り換えて酸化させることも可能である。

【0044】

熱処理の温度を $800\sim 1400^{\circ}C$ の範囲とするのは、 $800^{\circ}C$ 未満の温度以下では、保護膜として機能するのに十分な酸化皮膜が生成しないためである。また、 $1400^{\circ}C$ を超える温度では皮膜の量が多くなり過ぎてDPF用途において重要特性である圧力損失に悪影響を与えるためである。

【0045】

本発明における皮膜の形成方法としては、炭化珪素粒子を含む原料を押出成形によってハニカム構造体形状とし、酸素含有雰囲気中でバインダーを除去した後、熱処理を行い、その後、本焼成しても良い。そして、本焼成後にアルミナ及びセリアを含有する触媒を担持させることにより、本発明の炭化珪素質触媒体を作製することができる。

【0046】

この方法における熱処理は、 $400\sim 1000^{\circ}C$ の温度で行うことが好ましい。熱処理の温度が $400^{\circ}C$ 未満では、保護膜として機能するのに十分な酸化膜が生成しない一方、 $1000^{\circ}C$ を超える場合には、本焼成前に粒子表面の皮膜量が多くなり過ぎて焼結を抑制する悪影響が生じるためである。

【実施例】

【0047】

セラミックス原料として、平均粒径が $48\mu m$ のSiC粉と、金属Si粉とを80:20の比率（重量比）で混合し、造孔材としてデンプンを加え、さらにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加し、真空土練機により可塑性の坏土を作製した。

【0048】

この坏土を押出成形してハニカム構造体とした後、このハニカム構造体をマイクロ波及び熱風で乾燥し、隔壁（図2における隔壁2）の厚さが $310\mu m$ 、セル密度が 46.5 セル/ cm^2 （300セル/平方インチ）、断面の一辺が $35mm$ の正方形、長さが $152mm$ のハニカム構造の成形体とした。そして、この成形体を大気雰囲気中 $400^{\circ}C$ で脱脂し、その後、Ar不活性雰囲気中で約 $1450^{\circ}C$ で本焼成して、Si結合SiCのハニカムセグメントとした。

【0049】

ハニカムセグメントの平均細孔径を水銀圧入法によって測定し、気孔率をアルキメデス法により測定した。その結果、気孔率52%、平均細孔径 $20\mu m$ の担体となっていた。これを基材Aとする。

【0050】

また、セラミックス原料として、平均粒径が $12\mu m$ のSiC粉、焼結助剤として酸化鉄、酸化イットリウム、有機バインダとしてメチルセルロース、造孔剤としてデンプン、界面活性剤及び水を添加し、真空土練機により可塑性の坏土を作製した。

【0051】

この坏土を押出成形してハニカム構造体とした後、このハニカム構造体をマイクロ波及び熱風で乾燥し、隔壁の厚さが $310\mu m$ 、セル密度が 46.5 セル/ cm^2 （300セル/平方インチ）、断面の一辺が $35mm$ の正方形、長さが $152mm$ のハニカム構造の成形体とした。そして、この成形体を大気雰囲気中 $550^{\circ}C$ で脱脂し、その後、Ar不活性雰囲気中で $2300^{\circ}C$ で本焼成することにより、再結晶SiCのハニカムセグメントとした。

【0052】

このハニカムセグメントの平均細孔径を水銀圧入法により測定し、気孔率をアルキメデス法により測定した。その結果、気孔率42%、平均細孔径 $10\mu\text{m}$ の担体となっていた。これを基材Bとする。

【0053】

次に、以上によって作製した基材A、Bを表1に示す方法で熱処理することにより、表面に皮膜（酸化皮膜）を設けた。

【0054】

実施例1～4、11、12及び16、17において、熱処理は、下記(1)及び(2)で示すように、本焼成後に行う方法と、脱脂後における本焼成前に行う方法の2通りで実施した。

【0055】

(1) 脱脂(脱バインダー)→Ar雰囲気下での本焼成→熱処理(実施例1～4及び16、17)

(2) 脱脂(脱バインダー)→熱処理→Ar雰囲気下での本焼成(実施例11、12)

実施例13では、上記熱処理において、ウェッターを用いて、エアーをバブリングさせることにより、 H_2O を含ませて炉内に送り込むことにより行った。このときのウェッターのヒーター温度は 40°C とした。

【0056】

実施例14及び15では、LNG（液化天然ガス）を燃料として用いてバーナー燃焼加熱により熱処理を行った。空気と燃料の比は最高温度域で、おおよそ1.2程度とした。

【0057】

実施例5～7では、ゾルのプレコート後に熱処理を行った。すなわち、実施例5～7では、硝酸溶液のアルミナゾル及びジルコニアゾルあるいはシリカゾルにディッピングによりウオッシュコートした。コート量は 30g/L とした。その後、表1における温度の熱処理によって焼き付けた。この焼き付けの後、表1に示す温度で熱処理を行った。焼成後において、X線回折により結晶相の同定を行ったところ、実施例5ではジルコン、実施例7ではムライトが生成していることが確認された。すなわち、実施例5～7では、以下の手順での処理を行ったものである。

【0058】

脱脂(脱バインダー)→Ar雰囲気下での本焼成→ゾルプレコート→熱処理

実施例8～10では、原料に前駆体を添加して熱処理を行った。すなわち、基材Aの作製段階において、原料に対してジルコニア、アルミナを5重量%ずつ添加して本焼成し、その後、表1に示す温度で熱処理を行った。焼成後において、X線回折により結晶相の同定を行ったところ、実施例8ではジルコン、実施例10ではムライトが生成していることが確認された。

【0059】

比較例1では、基材Aに対して、本焼成工程のみで熱処理を行なわなかった。比較例2、3では、本焼成後に行う方法と、脱脂後における本焼成前に行う方法について、表1に示す温度で熱処理を実施した。比較例4では、基材Bに対して、本焼成工程のみで熱処理を行なわなかった。

【0060】

以上の熱処理によって皮膜を形成した後、ハニカムセグメントの表面にアルミナ及びセリアを担持させた。この担持は、以下の手順で行った。

【0061】

すなわち、市販の γ -アルミナ粉末(比表面積; $200\text{m}^2/\text{g}$)、 $(\text{NH}_3)_2\text{Pt}(\text{NO}_2)_2$ 水溶液及びセリアの粉末をポットミル内で2時間攪拌混合した後、得られた(白金+セリア)含有 γ -アルミナ粉末に、市販のアルミナゾルと水分を添加し、ポットミル内で10時間湿式粉碎することにより、触媒液(ウオッシュコート用スラリー)を調整した。そして、この触媒液に対するディップコーティングを行うことにより 50g/L の担持

量になるように触媒をコーティングした。

【0062】

表1における「酸素量分析」欄における酸素量は、JIS R1616「ファインセラミックス用炭化けい素微粉末の化学分析方法」に準じ、不活性ガス融解-赤外線吸収法により測定した。測定は、酸素分析装置（堀場製作所製、商品名「EGAW-650W」）を用いて行った。

【0063】

表1における「酸化試験」は低酸素分圧下酸化試験によって行った。すなわち、得られた炭化珪素質触媒体を、電気炉内で酸素1%+Arガスの低酸素分圧雰囲気下で1200℃、10min保持し、その酸化増量及び外観変化を検査した。

【0064】

表1に示すように、実施例1～17では、比較例1～4に比べて急激な酸化が抑制された良好な結果となっている。

【表1】

	基材	原料 添加	プレ コート	熱処理 工程	熱処理条件 温度、時間	酸素量 分析 (wt%)	酸化試験 外観	酸化試験 重量変化 (%)
実施例1	A			本焼後	1000℃6hr	2.0	変化なし	0.1
実施例2	A			本焼後	1200℃3hr	2.5	変化なし	0.1
実施例3	A			本焼後	1300℃3hr	4.0	変化なし	0.1
実施例4	A			本焼後	1400℃3hr	6.0	変化なし	0.1
実施例5	A		ZrO ₂	本焼後	1200℃3hr	2.0	変化なし	0.1
実施例6	A		ZrO ₂	本焼後	1300℃3hr	3.5	変化なし	0.1
実施例7	A		Al ₂ O ₃	本焼後	1200℃3hr	2.1	変化なし	0.1
実施例8	A	ZrO ₂		本焼後	1200℃3hr	2.0	変化なし	0.1
実施例9	A	ZrO ₂		本焼後	1300℃3hr	3.5	変化なし	0.1
実施例10	A	Al ₂ O ₃		本焼後	1200℃3hr	2.0	変化なし	0.1
実施例11	A			脱脂後	600℃2hr	3.0	変化なし	0.1
実施例12	A			脱脂後	800℃2hr	4.0	変化なし	0.1
実施例13	A			本焼後	蒸気吹込み 1100℃3hr	3.0	変化なし	0.1
実施例14	A			本焼後	ハート-燃焼 1200℃5hr	4.0	変化なし	0.1
実施例15	A			本焼後	ハート-燃焼 1250℃3hr	4.0	変化なし	0.1
実施例16	B			本焼後	1000℃3hr	2.0	変化なし	0.0
実施例17	B			本焼後	1200℃3hr	2.1	変化なし	0.1
比較例1	A			なし	—	1.0	白色化	3.1
比較例2	A			本焼後	600℃3hr	1.5	白色化	2.8
比較例3	A			脱脂後	300℃3hr	1.5	白色化	3.0
比較例4	B			なし	—	0.5	白色化	3.1

【産業上の利用可能性】

【0065】

ハニカム構造体の急激な酸化を抑制することができ、高温での耐久性を有しているため、DPFなどのディーゼルエンジンから排出されるパティキュレートを含んだ排ガス浄化用のフィルタとして利用することができる。

【図面の簡単な説明】

【0066】

【図1】ハニカム構造体の一例の斜視図である。

【図2】ハニカム構造体の内部を示す図1におけるA-A線断面図である。

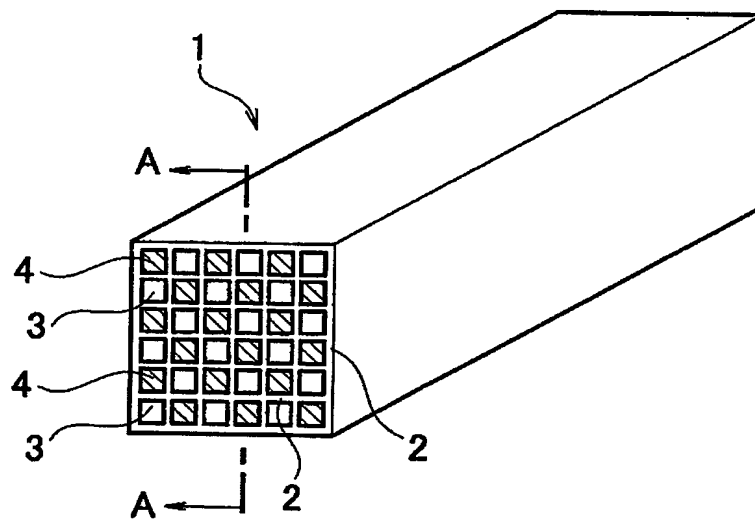
【符号の説明】

【0067】

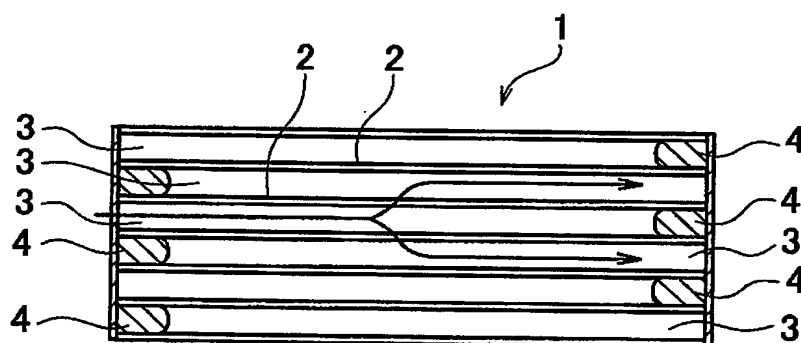
- 1 ハニカム構造体
- 2 隔壁
- 3 流通孔
- 4 充填材

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 炭化珪素粒子を骨材とし、アルミナ及びセリアを触媒として担持したハニカム構造体の急激な酸化を抑制し、高温耐久性を付与する。

【解決手段】 炭化珪素質触媒体は、骨材としての多数の炭化珪素粒子が多数の細孔を保持した状態で相互に結合した結合組織により構成された多孔体からなるハニカム構造体に、アルミナ及びセリアを成分として含有する触媒が担持されている。触媒が結合組織を構成する炭化珪素粒子の表面に、ハニカム構造体の 2 重量%以上 1 0 重量%以下の酸素と、珪素を含む酸化物とからなる皮膜を介して担持されている。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-292235
受付番号	50301337227
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成15年 8月19日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000004064
【住所又は居所】	愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
【氏名又は名称】	日本碍子株式会社

【代理人】

【識別番号】	100108707
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第1ビル9階三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	中村 友之

【代理人】

【識別番号】	100083806
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	三好 秀和

【選任した代理人】

【識別番号】	100095500
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	伊藤 正和

【選任した代理人】

【識別番号】	100101247
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	高橋 俊一

【選任した代理人】

【識別番号】	100098327
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	高松 俊雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100108914

【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第1ビル9階 三好内外国特許事務所

【氏名又は名称】 鈴木 壮兵衛

【選任した代理人】

【識別番号】 100104031

【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所

【氏名又は名称】 高久 浩一郎

特願 2003-292235

ページ: 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000004064]

1. 変更年月日

[変更理由]

住所
氏名

新規登録

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
日本碍子株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.